

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problems Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

09.03.01
097869864日 本 国 特 許 庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENTJP00/7982
#5

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application:

2000年 4月28日

REC'D 12 MAR 2001

出 願 番 号
Application Number:

特願2000-131451

WIPO PCT

出 願 人
Applicant (s):

鐘淵化学工業株式会社

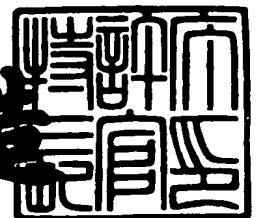
ETKU

PRIORITY
DOCUMENTSUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2001年 4月13日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3029341

【書類名】 特許願

【整理番号】 SGA-3777

【提出日】 平成12年 4月28日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 B29D 7/01

B29D 11/00

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県神戸市北区筑紫が丘 8 丁目 4 - 9

【氏名】 藤井 貞男

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府摂津市鳥飼西 5 - 2 - 2 3

【氏名】 疋田 敏彦

【特許出願人】

【識別番号】 000000941

【氏名又は名称】 鐘淵化学工業株式会社

【代表者】 武田 正利

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 005027

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

置換または非置換アクリロニトリルからなり、その含有量が10重量%から40重量%であることを特徴とする請求項1から5記載の透明フィルム

【請求項7】 熱可塑性プラスチックBにおける置換または非置換アクリロニトリル成分が20重量%から50重量%であり、置換または非置換スチレン成分が50重量%から80重量%であることを特徴とする請求項1から6記載の透明フィルム

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は光学特性・機械特性に優れた、新規な光学フィルムに関する。

【0002】

【従来の技術】 近年、電子機器はますます小型化し、ノート型パソコン、ワードプロセッサ、携帯電話、携帯情報端末に代表されるように、軽量・コンパクトという特長を生かした液晶表示装置が多く用いられるようになってきている。これら液晶表示装置は、偏光フィルムに始まり、その表示品位を保つために各種フィルムが用いられている。また、携帯情報端末や携帯電話向けに液晶表示装置を更に軽量化する目的で、ガラス基板の代わりにプラスチックフィルムを用いた液晶表示装置も実用化されている。

【0003】

液晶表示装置の様に、偏光を取り扱う場合、用いるプラスチックフィルムは光学的に透明であることのほか、光学的な均質性が求められ、ガラス基板をプラスチックフィルムに代えたプラスチック液晶表示装置用のフィルム基板の場合、複屈折と厚みの積で表される位相差の小さい他、外部の応力などによりフィルムの位相差の変化しにくいことが要求される。また、位相差フィルムへの応用の際にも、加工あるいは使用時の応力により位相差変化の小さいことが要求されている。

【0004】

一般的には、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン等の、エンジニアリングプラスチックやトリアセチルセルロースな

【書類名】 明細書

【発明の名称】 透明フィルム

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 少なくとも、(A) オレフィン成分と側鎖に置換または非置換イミド基を有する成分からなる熱可塑性プラスチック A、及び、(B) 側鎖に少なくとも置換または非置換フェニル基及びニトリル基を有する熱可塑性プラスチック B、を含有することを特徴とし、光線透過率が 85% 以上、ヘーズが 2% 以下、耐揉疲労が 30 回以上、である透明フィルム。

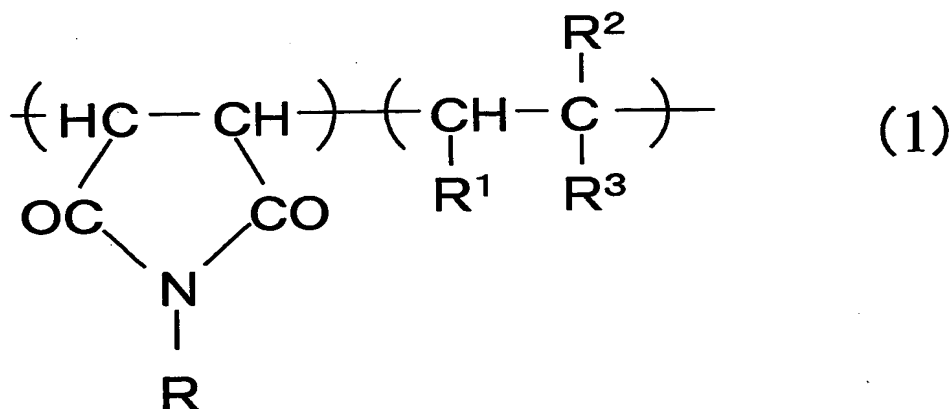
【請求項 2】 フィルムの引き裂き伝播強度が 150 gf/mm 以上であることを特徴とする、請求項 1 記載の透明フィルム

【請求項 3】 位相差が 20 nm 以下であることを特徴とする、請求項 1 又は 2 記載の透明フィルム

【請求項 4】 フィルム厚み方向の位相差が、200 nm 以下であることを特徴とする請求項 1 から 3 記載の透明フィルム

【請求項 5】 熱可塑性プラスチック A が式 (1) で表され、その含有量が 60 重量% から 90 重量% であることを特徴とする請求項 1 から 4 記載の透明フィルム

【化 1】



(ここで R は炭素数 1 ～ 18 のアルキル基、3 ～ 12 のシクロアルキル基を、R¹、R² 及び R³ はそれぞれ独立に水素又は炭素数 1 ～ 8 のアルキル基を示す。)

【請求項 6】 熱可塑性プラスチック B が、置換または非置換スチレンと、

どのセルロース類がフィルム用のプラスチックとして知られている。これらプラスチックを用いてフィルム化する場合、プラスチックの溶融流動・溶剤乾燥収縮・熱収縮や搬送応力等により成形中のフィルムに各種応力がかかり、得られたフィルムは分子配向に起因する位相差が残存するのを避けることはできない。そのため、必要により、フィルムの熱アニール等、特別な工程を設けて残存位相差を低減することがある。更に、該フィルムは、取扱中や偏光板と貼合した際の偏光板の変形に起因した応力により分子配向が引き起こされ、新たな位相差を生じることがあり、取り扱いに注意する必要があった。

【0005】

これらの問題を解決するため、より分極の小さい、すなわち、分子の配向による位相差の発現しにくいプラスチックを用いてフィルムを得ることが試みられており、シクロオレフィン系プラスチックや、マレイミド成分を有するオレフィン系プラスチックが提案されている。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】 これらフィルムは粘着加工を施して用いられることが多いが、前記シクロオレフィン系のような、分極の小さいプラスチックでは、粘着剤や接着剤との密着強度が小さく、特殊な粘着剤やフィルムの表面処理が必要となる。

【0007】

一方、マレイミド成分を有するオレフィン系プラスチックは粘着剤との密着性は良好であるが、機械的強度、特に繰り返しの屈曲に対する耐久性を表す「耐揉疲労」や引き裂き伝播強度が不十分であり、広い幅のフィルムを工業的に用いる際にはフィルムが破断し易く、取り扱い上の問題点を有していた。

【0008】

【課題を解決するための手段】 上記課題を解決するため、本発明者等は鋭意研究の結果、特定の組成を有するオレフィン・マレイミド系プラスチックを用いて、光学的特性を損なうことなく、粘着剤との密着性が良好でかつ、引き裂き伝播強度や耐揉疲労などの機械的強度の改善されたフィルムを得ることができることを見いだし、本発明に至った。

【0009】

すなわち、本発明は、少なくとも、(A) オレフィン成分と側鎖に置換または非置換イミド基を有する成分からなる熱可塑性プラスチックA、及び、(B) 側鎖に少なくとも置換または非置換フェニル基及びニトリル基を有する熱可塑性プラスチックB、を含有することを特徴とし、光線透過率が85%以上、ヘーズが2%以下、耐揉疲労が30回以上、である透明フィルム、に関する。

【0010】

【発明の実施の形態】 本発明に用いられる、側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性プラスチックAとしては、好ましくは、オレフィンと置換あるいは非置換マレイミドとの共重合体を用いることができる。該オレフィン・マレイミド共重合体は公知の方法例えば特開平5-59193号公報、特開平5-195801号公報、特開平6-136058号公報及び特開平9-328523号公報に記載されているように、二種類の単量体を直接共重合したり、一方の重合体にグラフト共重合したり、後述する前駆重合体に対して高分子反応によりイミド結合を導入し、得ることができる。

【0011】

好ましいオレフィンとしては、イソブテン、2-メチル-1-ブテン、2-メチル-1-ペンテン、2-メチル-1-ヘキセン、2-メチル-1-ヘプテン、1-イソオクテン、2-メチル-1-オクテン、2-エチル-1-ペンテン、2-エチル-2-ブテン、2-メチル-2-ペンテン、2-メチル-2-ヘキセン等のオレフィン系単量体である。また、好ましい置換マレイミドとしては、N-メチルマレイミド、N-エチルマレイミド、N-n-プロピルマレイミド、N-i-プロピルマレイミド、N-n-ブチルマレイミド、N-i-ブチルマレイミド、N-s-ブチルマレイミド、N-t-ブチルマレイミド、N-n-ペンチルマレイミド、N-n-ヘキシルマレイミド、N-n-ヘプチルマレイミド、N-n-オクチルマレイミド、N-ラウリルマレイミド、N-ステアリルマレイミド、N-シクロプロピルマレイミド、N-シクロブチルマレイミド、N-シクロペンチルマレイミド、N-シクロヘキシルマレイミド、N-シクロヘプチルマレイミド、N-シクロオクチルマレイミド等のN-置換マレイミドである。これら共

重合体には、その他のビニル系単量体を含有していてもかまわない。ビニル系単量体としては、アクリル酸メチルやアクリル酸ブチル等のアクリル酸系単量体や、メタクリル酸メチルやメタクリル酸シクロヘキシル等の、メタクリル酸系単量体、酢酸ビニル等のビニルエステル系単量体、メチルビニルエーテル等のビニルエーテル系単量体、無水マレイン酸の様な不飽和二重結合を有する酸無水物等の、第三の成分を含有していてもかまわない。これらオレフィン系単量体や置換あるいは非置換マレイミド系単量体、第三の成分は、必要によりそれぞれ複数の単量体を併用してもかまわない。

【 0 0 1 2 】

また、該オレフィン・マレイミド共重合体は、マレイン酸、上記オレフィン系単量体、及び、必要により上記第三の成分や該非置換又は置換マレイミドを含む、前駆重合体に、アミン化合物を反応させて得ることもできる。好ましいアミン化合物としては、メチルアミン、エチルアミン、*n*-プロピルアミン、*i*-プロピルアミン、*n*-ブチルアミン、*s*-ブチルアミン、*t*-ブチルアミン、シクロヘキシルアミン等の、アルキルアミンやアンモニア、ジメチル尿素、ジエチル尿素等を用いることができる。

【 0 0 1 3 】

該共重合体中の、マレイミド成分の含有量は、30モル%以上80モル%未満が好ましく、より好ましくは、40モル%以上60モル%以下である。この範囲を超えると、得られるフィルムの耐熱性や機械的強度が損なわれる。必要とされる耐熱性については、ガラス転移温度で80℃以上が好ましく、より好ましくは100℃以上、更に好ましくは130℃以上である。また、好ましい分子量の範囲は、 1×10^4 以上 1×10^5 以下の共重合体がいられる。より好ましい共重合体としては、マレイミド成分としては、Rがメチル基、エチル基、イソプロピル基、シクロヘキシル基から選ばれたアルキル基であり、オレフィン成分としては R^1 が水素、 R^2 、 R^3 はメチル基である共重合体である。より好ましいマレイミド成分及びオレフィン成分としては、N-メチルマレイミドとイソブチレンであり、N-メチルマレイミドとイソブテンの交互共重合体が特に好ましい。

【 0 0 1 4 】

本発明に用いられる側鎖に置換または非置換フェニル基及びニトリル基を有する熱可塑性プラスチックBとしては、アクリロニトリル・スチレン系の共重合体を好ましく用いることができる。該共重合体は、不飽和ニトリル系単量体とスチレン系単量体を共重合することにより得られる。好ましい不飽和ニトリル系単量体としては、アクリロニトリルや、メタクリロニトリルなどの α -置換不飽和ニトリルの他、フマロニトリル等の α 、 β 二置換オレフィン性不飽和結合を有するニトリル化合物も用いることができる。また、好ましいスチレン系単量体としては、スチレンやビニルトルエン、メトキシスチレン、クロロスチレンなどの置換または非置換スチレン系単量体や、 α -メチルスチレンなどの α -置換スチレン系単量体を用いることができる。

【 0 0 1 5 】

これらアクリロニトリル・スチレン系の共重合体中には必要に応じ第三成分を含有していてもかまわない。好ましい第三成分の一例としては、ブチルアクリレートなどのアクリル系単量体であり、また、エチレンやプロピレン等のオレフィン系単量体であり、これら単量体を一種または二種以上を共重合させることにより得られたフィルムの可撓性を増すことができる。また、その他の第三成分としては、N-置換マレイミドであり、特に、フェニルマレイミドを共重合成分として用いることにより、該共重合体の耐熱性を向上することができる。該共重合体は、これら単量体を直接共重合することにより得られるが、スチレン系または不飽和ニトリル系重合体に、該当する単量体をグラフト共重合させてもかまわない。また、ゴム弾性を有するアクリル系重合体にスチレン系単量体や不飽和ニトリル系単量体をグラフト重合させる事により好ましい共重合体を得ることができる。特に好ましい単量体は、不飽和ニトリル成分がアクリロニトリルであり、スチレン系単量体がスチレンである。これら共重合体はASプラスチックやAASプラスチックとして知られている。好ましい共重合体中の不飽和ニトリル系成分の含有量としては20～60重量%が望ましく、より好ましくは20～50重量%である。また、スチレン系成分の含有量としては、40～80重量%が好ましく、より好ましくは50～80重量%である。スチレン系やニトリル系の成分がこの範囲を超えると、フィルム中の分子の配向による複屈折が大きくなる他、該熱

可塑性プラスチック A との相溶性が乏しくなり、得られたフィルムのヘーズが大きくなり実用に耐えなくなる。

【 0 0 1 6 】

該熱可塑性プラスチック A が主としてイソブチレン及び N - メチルマレイミドからなる共重合体であり、熱可塑性プラスチック B が主としてアクリロニトリル及びスチレンからなる共重合体である場合は、アクリロニトリル及びスチレンの含有量を特定の範囲とする事により、驚くべき事に、広い組成範囲で良好な相溶性を示し、フィルムとした場合で、全光線透過率で 8 5 % 以上かつヘイズ 2 % 以下のフィルムを得ることができる。すなわち、熱可塑性プラスチック B の、アクリロニトリルの含有量として好ましくは 2 0 ~ 4 0 重量%、より好ましくは 2 5 ~ 3 0 重量%とし、また、スチレンの含有量として、好ましくは 6 0 ~ 8 0 重量%、より好ましくは 7 0 ~ 7 5 重量%とする事により、熱可塑性プラスチック B は該熱可塑性プラスチック A と、0 ~ 8 0 重量%の組成範囲で、全光線透過率で 8 5 % 以上かつヘイズ 2 % 以下の透明なフィルムを得ることができる。

【 0 0 1 7 】

分子の配向による位相差の小さいフィルムを得るには、該熱可塑性プラスチック A と熱可塑性プラスチック B との組成比が重要である。好ましい組成比はそれぞれの熱可塑性プラスチック A, B の種類により依存し、実験的に好ましい組成比を決める必要があるが、一般的には、該熱可塑性プラスチック A の含有量は 6 0 ~ 9 5 重量%、好ましくは、6 5 ~ 9 0 重量%であり、該熱可塑性プラスチック B の含有量は 5 ~ 4 0 重量%、好ましくは、1 0 ~ 3 5 重量%である。分子の配向による位相差の発現しやすさは、一定条件下でフィルムを延伸することにより発現する位相差（配向位相差）で評価することが可能である。すなわち、幅 5 c m、長さ 2 5 c m のフィルムを、両短辺を保持してガラス転移温度にて 1 分保ち、1. 5 倍に長さ方向へ 0. 2 m / 分の速度で一軸に延伸した。その後、得られたフィルムを冷却し、サンプル中央部の位相差を測定した。また、別途フィルムの厚みを測定し、フィルム厚み 1 0 0 μ m に換算した時の位相差を計算し、配向位相差とする。一般的に光学フィルムとして使用されているビスフェノール A タイプのポリカーボネートは 1 0 0 0 n m 以上の大きな配向位相差を示すが、熱

可塑性プラスチック A 及び熱可塑性プラスチック B の組成を上記範囲に保つことにより、好ましくは 3 0 0 n m 以下、より好ましくは 2 0 0 n m 以下、更に好ましくは 1 0 0 n m 以下とすることができる。更に、この範囲で組成を変化させることにより、配向位相差を制御が可能であり、驚くべきことに、組成を最適化することにより配向位相差が実質的にゼロである、すなわち分子が配向しても位相差が発現されないフィルムを得ることができる。

【 0 0 1 8 】

該熱可塑性プラスチック A、B を前記特定の組成とする事により、位相差値が 2 0 n m 以下、好ましくは 1 0 n m 以下であり、光線透過率が 8 5 % 以上、ヘーズが 2 % 以下である光学的に極めて透明なフィルムを得ることができ、得られたフィルムは、フィルムに働く応力等に起因した分子の配向による位相差が発現しにくくという特徴を有する。更に、フィルムの屈折率や位相差の、測定波長依存性も小さくすることができるという特徴を有しており、光学用途に用いる場合、特に有用である。

【 0 0 1 9 】

本発明に関わるフィルムは、熔融押出し法、インフレーション法、溶液流延法などの公知のフィルム化方法により得ることができる。フィルム化方法は特に限定されない。フィルム化に際し、該熱可塑性プラスチック A と熱可塑性プラスチック B を単に混合してフィルム化してもかまわないし、予め両プラスチックを熱熔融混練しペレットなどに成形の後、フィルム化に供してもかまわない。フィルム化に先立ち、用いるプラスチックやペレットを予備乾燥しておくことはフィルムの発泡など、欠陥を防ぐ上で有用である。本発明フィルムは加工時の分子配向による複屈折が出にくいという特徴を有しているため、熔融押し出し法によるフィルム化も、好ましい方法である。また、フィルムの厚みばらつきを低減するためには、溶液流延法が特に好ましい方法である。この方法により、ダイライン等の欠陥が無く、また、フィルム厚みバラツキが 5 % 以下と小さく、位相差の小さい、光学的に等方なフィルムを容易に得ることができる。

【 0 0 2 0 】

溶剤流延法に用いることのできる溶剤は、公知の溶剤から選択される。塩化

メチレンやトリクロロエタン等のハロゲン化炭化水素系溶剤は該熱可塑性プラスチック A や熱可塑性プラスチック B を溶解しやすく、また沸点も低いため好適な溶剤の一つである。また、ジメチルホルムアミドやジメチルアセトアミドなどの、極性の高い非ハロゲン系の溶剤も用いることができる。さらに、トルエン、キシレンやアニソール等の芳香族系や、ジオキサン、ジオキソラン、テトラヒドロフランやピラン等の環状エーテル系、メチルエチルケトン等のケトン系の溶剤も使用可能である。これら溶剤は相互に混合して用いることもでき、また、アルコール等の非溶剤を混合して、溶剤の蒸発速度を制御することも、表面性の優れたフィルムを得るためには好ましい方法である。

【 0 0 2 1 】

本発明フィルムに関わる該熱可塑性プラスチック A 及び熱可塑性プラスチック B は、前記特定の組成とすることにより均一な溶液を与え、また、フィルム化した後も、光線透過率が 8 5 % 以上、ヘーズが 2 % 以下という光学的に極めて透明なフィルムを得ることができるという驚くべき特徴を有する。

【 0 0 2 2 】

溶液流延法によりフィルム化する場合、本発明に関わる該熱可塑性プラスチック A 及び熱可塑性プラスチック B を前記溶剤に溶解したのち、支持体に流延乾燥し、フィルムとする。好ましい支持体としては、ステンレスのエンドレスベルトや、ポリイミドフィルムや二軸延伸ポリエチレンテレフタレートフィルム等のような、フィルムを用いることが出来る。

【 0 0 2 3 】

該フィルムは、支持体上で残存溶剤量が 1 % 以下になるまで乾燥することも可能であるが、必要に応じて、フィルムが自己支持性を有するまでに溶剤を乾燥した後、フィルムを支持体から剥離し、更に乾燥することも可能である。フィルムの乾燥は、一般には、フロート法や、テンターあるいはロール搬送法が利用できる。フロート法の場合、フィルム自体が複雑な応力を受け、光学的特性の不均一が生じやすい。また、テンター法の場合、フィルム両端を支えているピンあるいはクリップの距離により、溶剤乾燥に伴うフィルムの幅収縮と自重を支えるための張力を均衡させる必要があり、複雑な幅の拡張制御を行う必要がある。一方、

ロール搬送法の場合、安定なフィルム搬送の為のテンションは原則的にフィルムの流れ方向（MD方向）にかかるため、応力の方向を一定にしやすい特徴を有する。従って、本発明に関わるフィルム化の、最も好ましい方法はロール搬送による乾燥法である。

【 0 0 2 4 】

このようにして得られたフィルムは、通常、機械的強度、特に繰り返しの屈曲に対する耐久性を表す耐揉疲労が10回以下であり、引き裂き伝播強度も100～120 gf/mmと小さいため、広幅のフィルムとして工業的に扱うには、困難を伴うが、本発明者らはフィルムを延伸することによりこれら機械的強度は大幅に改善されることを見いだした。延伸は、テンターを用いた横延伸、ロールを用いた縦延伸や、自由端一軸延伸、及びこれらを逐次組み合わせた、逐次二軸延伸や、縦と横を同時に延伸する同時二軸延伸等、公知の延伸法を用いることができる。

【 0 0 2 5 】

延伸温度及び延伸倍率は、得られたフィルムの引き裂き伝播強度を指標として最適の値を採用することができる。一般には、DSC法によって求めたフィルムのガラス転移温度を T_g としたときに、好ましい延伸温度の範囲は、 $T_g - 30^\circ\text{C}$ から $T_g + 30^\circ\text{C}$ であり、更に好ましくは $T_g - 20^\circ\text{C}$ から $T_g + 20^\circ\text{C}$ の範囲である。これより高い温度で延伸した場合、得られたフィルムの引き裂き伝播強度や耐揉疲労の改善が不十分であるほか、延伸倍率が過大になりすぎ工業的な実施が困難となる。これより低い温度で延伸した場合、フィルムが引き裂かれるなどの工程上の問題を引き起こす可能性がある。好ましい延伸倍率は延伸温度にも依存するが、一般には、1.1倍から3倍の範囲で選択される。該熱可塑性プラスチックAと熱可塑性プラスチックBがすでに述べた好ましい組成範囲にあるならば、適当な延伸条件を選択することにより、光線透過率やヘーズを低下させることなくフィルムの延伸が可能である。

【 0 0 2 6 】

フィルムの延伸による耐揉疲労の改善は、延伸方向への曲げに対して改善され、引き裂き伝播強度の改善は、延伸方向に対して直交する方向への引き裂き伝播

強度が改善される。そのため、ロール状フィルムに於いては、フィルム幅方向の引き裂き伝播強度が改善されたフィルムが必要な場合は縦延伸を行い、フィルムの機械方向（長手方向）を改善する場合は横延伸を適応することが好ましい。両方向の改善は、逐次二軸延伸又は同時二軸延伸が好ましく、同時二軸延伸は、フィルム面内に均一にこれら機械的特性を改善する事ができるため、特に好ましい。これら延伸の際に、得られるフィルムの面内位相差を制御し、直接位相差フィルムを得ることも可能である。また、二軸方向の延伸を調整し、それぞれの延伸による位相差を相殺することにより面内位相差を低く抑えることも可能である。

【 0 0 2 7 】

該熱可塑性プラスチック A と熱可塑性プラスチック B の組成比を適当に選択することにより、フィルムを延伸しても、位相差が殆ど発現されない構成とする事も可能である。この様な組成の場合、延伸し引き裂き伝播強度や耐揉疲労を改善した後も、位相差が大きくなり、本発明の特に好ましい実施態様の一つである。該熱可塑性プラスチック A が N-メチルマレイミドとイソブテンの交互共重合体を用いる場合の好ましい組成の例は、該熱可塑性プラスチック B が、アクリロニトリルとスチレンの共重合体の場合、アクリロニトリル成分が 20～40 重量%であり、かつ、熱可塑性プラスチック A に対して 10～40 重量%である。この様な組成とすることにより、位相差が、好ましくは 10 nm 以下、より好ましくは 5 nm 以下、のフィルムを得ることができる。また、フィルムの面内位相差のみならず、厚み方向の位相差も、フィルム位相差の視野角依存性を低減するためには重要である。フィルム厚み方向の位相差は、フィルム面内の最大屈折率を n_x 、 n_x と直交する方向の屈折率を n_y 、フィルム厚み方向の屈折率を n_z 、フィルムの厚みを d としたとき、 $((n_x + n_y) / 2 - n_z) \times d$ で表される。上記組成とする事により延伸フィルムの厚み方向位相差も、200 nm 以下、より好ましくは 100 nm 以下、更に好ましくは 50 nm 以下という、実質的に複屈折を示さないフィルムを得ることができる。

【 0 0 2 8 】

本発明フィルムの厚みは、20 μm から 150 μm であり、好ましくは 30 μm

mから100 μ mである。フィルムの光線透過率は、85%以上が好ましく、より好ましくは、88%以上である。また、フィルムヘーズは2%以下が好ましく、より好ましくは1%以下である。

【0029】

本発明フィルムは、必要に応じて少量の可塑剤や熱安定剤、紫外線吸収剤、滑剤等の加工性改良剤、あるいは、フィラーなどの公知の添加剤やその他の重合体を含含有していてもかまわない。特に該熱可塑性プラスチックAのイミド含有率が40モル%以上と高くなった場合、得られるフィルムは硬く脆くなるため、フィルムの応力白化や裂けを防止する目的で可塑剤を加えることは有効である。

【0030】

好ましい可塑剤を例示すると、フタル酸系可塑剤としては、フタル酸ジメチル、フタル酸ジエチル、フタル酸ジ-n-ブチル、フタル酸ジ-n-オクチル、フタル酸ジ-n-エチルヘキシル、フタル酸ジイソオクチル、フタル酸ジ-n-オクチル、フタル酸ジ-n-デシル、フタル酸ジイソデシル、フタル酸ジ-n-ドデシル、フタル酸ジイソトリデシル、フタル酸ジシクロヘキシル、フタル酸ブチルベンジル、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル、イソフタル酸ジ-2-エチルヘキシル、脂肪族二塩基酸系可塑剤としては、アジピン酸ジ-n-デシル、アジピン酸ジイソデシル、アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル、アゼライン酸ジ-2-エチルヘキシル、セバシン酸ジブチル、セバシン酸ジ-2-エチルヘキシル、リン酸エステル系可塑剤としては、リン酸トリブチル、リン酸トリ-2-エチルヘキシル、リン酸-2-エチルヘキシル、リン酸トリクレジル、エポキシ系可塑剤としては、エポキシ化大豆油、エポキシ化トール油脂肪酸-2-エチルヘキシル、脂肪酸エステル系可塑剤としては、ステアリン酸ブチル、オレイン酸ブチル、塩素化パラフィン、塩素化脂肪酸メチル、高分子系添加剤としては、ポリエチレングリコールジメチルエーテル、ポリエチレングリコール安息香酸エステル、エステル基を含有する高分子化合物（アジピン酸、セバシン酸、フタル酸などの2塩基酸と1,2-プロピレングリコール、1,3-プロピレングリコールなどの重縮合物）などが挙げられる。これら添加剤の中でも、芳香族基を含まない、アジピン酸ジ-n-デシル、アジピン酸ジイソデシル、アジピン酸ジ-2-エチ

ルヘキシル、アゼライン酸ジ-2-エチルヘキシル、セバシン酸ジブチル、セバシン酸ジ-2-エチルヘキシル、リン酸トリブチル、リン酸トリ-2-エチルヘキシル、リン酸-2-エチルヘキシル、リン酸トリクレジル、エポキシ化大豆油、エポキシ化トール油脂肪酸-2-エチルヘキシル、ステアリン酸ブチル、オレイン酸ブチル、塩素化パラフィン、塩素化脂肪酸メチル、ポリエチレングリコールジメチルエーテル、あるいはエステル基を含有する高分子化合物（アジピン酸、セバシン酸などの2塩基酸と1, 2-プロピレングリコール、1, 3-プロピレングリコールなどの重縮合物）などの可塑剤が好ましい。これら可塑剤は上記のフィルム100重量部に対して2~20重量部添加される。

【0031】

本発明フィルムは、そのまま、あるいは各種加工を行い、光学的等方フィルム、位相差フィルム、偏光保護フィルム用として、液晶表示装置周辺等の公知の光学的用途に好適に用いることができる。

【0032】

本発明フィルムは、必要によりフィルムの片面あるいは両面にコロナ処理やプラズマ処理等の表面処理を行うことができる。特に、フィルム表面にコーティング加工等の表面処理が施される場合や、粘着剤により別のフィルムがラミネートされる場合は、相互の密着性を上げるための手段として、フィルム表面のコロナ処理は好適な方法である。好ましいコロナ処理の程度は、 54 dyn/cm 以上である。

【0033】

また、発明フィルムの表面には、必要に応じハードコート層などのコーティング層を形成することができる。また、本発明フィルムは、コーティング層を介して、または、介さずに、スパッタリング法等によりインジウムスズ酸化物系等の透明導電層を形成し、プラスチック液晶表示装置の電極基板やタッチパネルの電極基板として用いることもできる。該コーティング層は厚み $0.1 \mu\text{m}$ から $10 \mu\text{m}$ 、好ましくは $1 \mu\text{m}$ から $5 \mu\text{m}$ の範囲で形成する事が好ましい。好ましいコーティング層を例示すると、有機系コーティング層としては、メラミンプラスチック系、アクリルプラスチック系、ウレタンプラスチック系、アルキドプラスチ

ック系、含フッ素系プラスチック系であり、また有機—シリコン複合系としては、ポリエステルポリオールやエーテル化メチロールメラミンにアルキルトリアルコキシシラン、テトラアルコキシシランの部分加水分解物を配合したものが挙げられる。また、アミノシランやエポキシシランの部分加水分解物、シランカップリング剤とアルキルトリアルコキシシラン・テトラアルコキシシランの部分加水分解物、コロイダルシリカとアルキルトリアルコキシシランの加水分解物等のシリコン系材料も好適に用いることができる。これら材料を本発明位相差フィルムの片面または両面にコーティング後、熱硬化により耐溶剤性皮膜を有するフィルムを得ることが出来る。この時、低温硬化型の触媒を同時に用いることは、好ましくないフィルムの熱変性を抑制するために好ましい方法である。また多官能アクリレート等のモノマーやオリゴマーに光増感剤を添加し、紫外線や電子線により得られる硬化層も好適に用いることが出来る。該コーティング層には、必要により、各種フィラーを添加することができる。透明導電層を有する本発明位相差フィルムを抵抗膜式タッチパネルの電極フィルムとして用いた場合、フィラーを添加することにより透明電極間での光の干渉による好ましくないニュートンリングの発生や、透明導電基板同士のブロッキングを防止することができる。好ましいフィラーとしては、ポリメタクリル酸エステル系やポリアクリル酸エステル系、ポリオレフィン系、ポリスチレン系、ジビニルベンゼン系、ベンゾグアナミン系、有機シリコン系等の有機系フィラーあるいはシリカやアルミナ、酸化チタン等の無機系フィラーが使用可能である。一方、フィラーの添加により表示像のギラツキ感を与える事があり、フィラー形状、コーティング剤やコーティング条件の最適化により、J I S K 7 1 0 5 の 6 . 6 記載の方法で 0 . 1 2 5 m m の光学くしを用いて測定した透過像鮮明度を 8 0 % 以上にすることが望ましい。

【 0 0 3 4 】

【実施例】 実施例および比較例に示される各物性値の測定方法を以下に示す。

＜ガラス転移温度＞ J I S K 7 1 2 1 に準拠し測定した。

＜光線透過率＞ J I S K 7 1 0 5 - 1 9 8 1 の 5 . 5 記載の方法により 5 5

0 nmの光を用いて測定した。

＜ヘイズ＞ J I S K 7 1 0 5 - 1 9 8 1 の 6 . 4 記載の方法により測定した。

＜位相差＞顕微偏光分光光度計（オーク製作所：T F M - 1 2 0 A F T）を用い、測定波長 5 1 4 . 5 nm で測定した。

＜厚み方向の位相差＞顕微偏光分光光度計（オーク製作所：T F M - 1 2 0 A F T）を用い、5 1 4 . 5 nm の測定波長で位相差の角度依存性を測定し、 n_x 、 n_y 、 n_z を求める。別途フィルムの厚みを測定し、下式を用いて厚み方向の位相差を計算する。

【 0 0 3 5 】

厚み方向の位相差 = $((n_x + n_y) / 2 - n_z) \times d$

＜引裂伝播強度＞ 島津製作所製のオートグラフを使用して J I S K 7 1 2 8（トラウザー法）に従い測定した。尚、測定は引張速度が 2 0 0 mm / 分で行い、平均厚み $50 \pm 5 \mu m$ のフィルムを使用した。

＜耐揉疲労＞ 東洋精機製作所社製、M I T 耐揉疲労試験機（FOLDING ENDURANCE TESTER）D 型を使用し、J I S C 5 0 1 6 に準拠して測定した。尚、測定は、幅 1 5 mm、長さ 2 0 0 mm、平均厚み $50 \pm 5 \mu m$ の形状のサンプルを使用した。

【 0 0 3 6 】

以下実施例に従って本発明を具体的に説明する。

【 0 0 3 7 】

（実施例 1） イソブテンと N - メチルマレイミドから成る交互共重合体（N - メチルマレイミド含量 5 0 モル%、ガラス転移温度 1 5 7℃）1 0 0 重量部と、アクリロニトリル及びスチレンの含量がそれぞれ 2 6 重量%、7 4 重量%であるスチレンとアクリロニトリルからなる共重合体 3 3 重量部（プラスチック分で 2 5 重量%）を、塩化メチレン溶液に固形分濃度 1 5 重量%になるように溶解し、ガラス板上に敷いた二軸延伸 P E T フィルム上に流延し室温で 6 0 分放置した。その後フィルムを剥し、4 片固定治具に挟んで、1 0 0℃で 1 0 分間、更に 1 4 0℃で 1 0 分間、1 6 0℃で 3 0 分間の乾燥を行って厚さ $54 \mu m$ のフィルム

を得た。このフィルムの厚みバラツキは2%、位相差値は3 nm、光線透過率は92%、ヘイズは0.3%であり、フィルムの引き裂き伝播強度は123 gf/mm、耐揉疲労は7回であった。このフィルムはガラス転移温度145℃であり、150℃にて1.5倍延伸した後のフィルム位相差は面内方向で3 nm、厚み方向で3 nm、光線透過率は92%、ヘイズは0.4%であった。フィルム厚さ45 μmを有する延伸フィルムの、延伸方向に直交する方向のフィルム引き裂き伝播強度は192 gf/mmであり、延伸方向の耐揉疲労（延伸方向をサンプルの長手方向とした耐揉疲労）は218回であった。

（実施例2）実施例1と同様にして1軸延伸フィルムを得、再度延伸方向と直交する方向へ延伸し（逐次二軸）、フィルム厚50 μmを有する逐次二軸延伸フィルムを得た。二度目の延伸方向と直交する方向のフィルムの引き裂き伝播強度は151 gf/mm、耐揉疲労は121回であり、位相差は面内方向で3 nm、厚み方向で3 nmであった。

【0038】

（実施例3～6） アクリロニトリル含量及びスチレンとアクリロニトリルからなる共重合体重量部数を変化させ、フィルムを得た。それぞれTgにて、実施例2と同様にして、逐次二軸に1.5倍延伸した後の得られたフィルムの特性を表1に示した。

【0039】

（実施例7） アクリロニトリル含量及びスチレンとアクリロニトリルからなる共重合体重量部数を変化させ、実施例1と同様にして、一軸に2倍延伸した厚み55 μmを有する延伸フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表1に示した。

【0040】

【表 1】

表 1

	ニトリル含量 重量%	重量 %	光線透過率 %	ヘーズ %	位相差 nm	厚み方向 位相差 nm	耐屈曲性 回	引き裂き強度 gf/mm
実施例 1	26	25	92	0.4	3	3	218	192
実施例 2	26	25	92	0.5	3	3	121	151
実施例 3	24	20	92	0.3	6	151	108	179
実施例 4	26	30	92	0.4	5	29	181	221
実施例 5	26	35	92	0.4	4	95	215	169
実施例 6	28	23	92	0.7	6	90	177	252
実施例 7	26	20	92	0.5	90	46	252	292

【0041】

(参考例) 実施例 1 で得られたフィルムにコロナ処理を行ったところ、コロナ処理面の塗れ性は 56 dyn/cm であった。アクリル系粘着剤を用い、偏光板の偏光軸とコロナ処理済みフィルムを積層貼合した。この貼合板を温度 60°C 、湿度 95% の湿熱環境下に長期放置しても、偏光板とフィルムとの界面で剥離は認められなかった。

【0042】

【発明の効果】 本発明の透明フィルムは、分子の配向による複屈折が生じにくく、しかも、引き裂き伝播強度が改善され、粘着剤との密着性にも優れた光学フィルムを与える。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 位相差が生じにくく、しかも、組成比を変えることにより位相差の発現性が制御可能な機械強度に優れたフィルムを得る

【解決手段】 少なくとも、(A) オレフィン成分と側鎖に置換または非置換イミド基を有する成分からなる熱可塑性プラスチックA、及び、(B) 側鎖に少なくとも置換または非置換フェニル基及びニトリル基を有する熱可塑性プラスチックB、を含有することを特徴とし、光線透過率が85%以上、ヘーズが2%以下、耐揉疲労が30回以上、であるフィルムとする。

特 2 0 0 0 - 1 3 1 4 5 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 0 9 4 1]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 7 日
[変更理由]	新規登録
住 所	大阪府大阪市北区中之島 3 丁目 2 番 4 号
氏 名	鐘淵化学工業株式会社

THIS PAGE BLANK (USPTO)